

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 2 月 19 日 (19.02.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/015011 A1

(51) 国際特許分類:  
C08J 5/18, B32B 15/08 // C08L 79:08

C08L 79/08,

(TANIGUCHI,Kouichirou) [JP/JP]; 〒526-8660 滋賀県  
長浜市三ツ矢町 5 番 8 号 三菱樹脂株式会社 長浜工  
場内 Shiga (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2002/008080

(22) 国際出願日: 2002 年 8 月 7 日 (07.08.2002)

(74) 代理人: 松井 光夫 (MATSUI,Mitsuo); 〒105-0003 東  
京都 港区西新橋 2 丁目 1 9 番 2 号 西新橋 Y S ビル  
3 階 松井特許事務所 Tokyo (JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(81) 指定国 (国内): CN, KR, US.

(26) 国際公開の言語: 日本語

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB, IT).

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱樹  
脂株式会社 (MITSUBISHI PLASTICS, INC.) [JP/JP];  
〒100-0005 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号  
Tokyo (JP).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

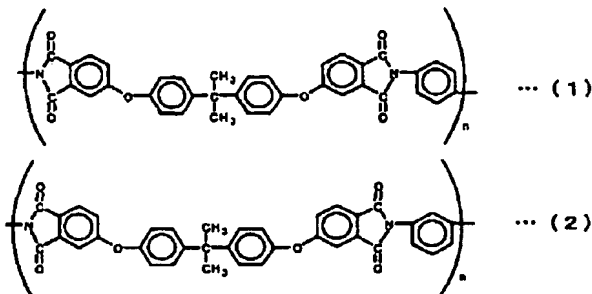
(72) 発明者; および

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

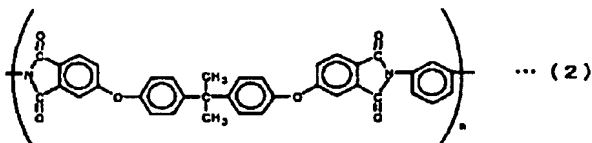
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 谷口 浩一郎

(54) Title: HEAT-RESISTANT FILM AND METAL LAMINATE THEREOF

(54) 発明の名称: 耐熱性フィルムおよびその金属積層体



... (1)



... (2)

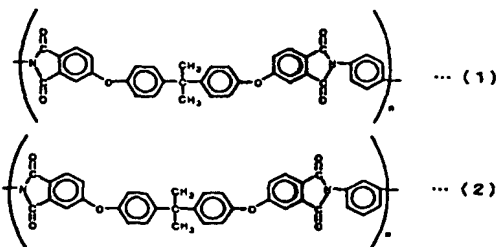
(57) Abstract: A heat-resistant film which comprises a mixture obtained by compounding 100 parts by weight of a resin composition comprising at least three ingredients, i.e., (A-1) a polyetherimide resin having repeating units represented by the following structural formula (1), (A-2) a polyetherimide resin having repeating units represented by the following structural formula (2), and (B) a polyaryl ketone resin having a crystal fusion peak temperature of 260°C or higher, with 5 to 50 parts by weight of a filler, characterized in that the proportion of each ingredient satisfies the relationships  $\{(A-1)+(A-2)\}/(B)=(70-30)/(30-70)$  and  $(A-1)/(A-2)=(70-30)/(30-70)$ .

[続葉有]

WO 2004/015011 A1

## (57) 要約:

下記構造式(1)の繰り返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂(A-1)と下記構造式(2)の繰り返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂(A-2)および結晶融解ピーク温度が260℃以上であるポリアリールケトン樹脂(B)の少なくとも3成分からなる樹脂組成物100重量部に対して充填材を5-50重量部の範囲で混合したフィルムであって、各成分の混合重量比が{(A-1)+(A-2)}/(B)=70-30/30-70、かつ(A-1)/(A-2)=70-30/30-70であることを特徴とする耐熱性フィルム。



## 明 細 書

## 耐熱性フィルムおよびその金属積層体

## 技術分野

- 5 本発明は、エレクトロニクス用部材、特に銅箔積層板に好適に使用される耐熱性フィルムに関し、詳細には低温（ $\leq 260^{\circ}\text{C}$ ）での熱融着性が良好であり、かつPCT（プレッシャークッカー試験）処理後のはんだ耐熱性と端裂抵抗値のバランスに優れた耐熱性フィルムおよびその金属積層体に関する。

10

## 背景技術

- ポリエーテルエーテルケトン樹脂に代表される結晶性ポリアリールケトン樹脂は、耐熱性、難燃性、耐加水分解性、耐薬品性などに優れている為、航空機部品、電気・電子部品
- 15 を中心に多く採用されている。しかしながら、ポリアリールケトン樹脂は原料価格が非常に高価な上、樹脂自体のガラス転移温度が約 $140\sim 170^{\circ}\text{C}$ 程度と比較的低いことから、耐熱性の改良検討が種々行われてきた。その中でも良好な相溶性を示す系として、非晶性ポリエーテルイミド樹脂とのブレン
- 20 ドが注目されてきた。本発明者らは、特開2000-38464号公報、特開2000-200950号公報等で上記混合組成物を用いたプリント配線基板及びその製造方法を提案した。これらの特許公報に記載されている結晶性ポリアリールケトン樹脂と非晶性ポリエーテルイミド樹脂との混合組成物（通常、寸法
- 25 安定性向上のため無機充填剤等を含む）からなり、結晶性が制御され

たフィルムは、低温（ $\leq 260^{\circ}\text{C}$ ）での熱融着性が良好であり、該フィルムを用いてフレキシブルプリント配線基板を作製すると、寸法安定性及び耐熱性が良好である。しかし、機械的強度、特に端裂抵抗値は必ずしも十分なレベルにはなく、又、耐折性、耐屈曲性が不十分であるため基板の接続信頼性に劣るという問題がある。さらに、基板加工工程でのハンドリング適性が不十分であるという問題があり、それらの改良が望まれていた。

#### 発明の開示

10 本発明の目的は、低温（ $\leq 260^{\circ}\text{C}$ ）での熱融着性が良好であり、かつPCT（プレッシャークッカー試験）処理後のはんだ耐熱性と端裂抵抗値のバランスに優れたエレクトロニクス用部材として好適な耐熱性フィルムおよびその金属積層体を提供することにある。

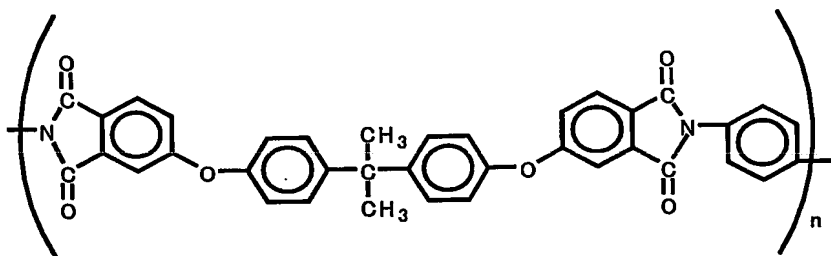
15 本発明者らは、鋭意検討を重ねた結果、結晶性ポリアリールケトン樹脂と特定の2種類の非晶性ポリエーテルイミド樹脂からなる混合樹脂組成物を主成分として用いることで、上記課題を解決することのできる耐熱性フィルムを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、下記構造式（1）の繰り返し単位を有する  
20 るポリエーテルイミド樹脂（A-1）と下記構造式（2）の繰り返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂（A-2）および結晶融解ピーク温度が $260^{\circ}\text{C}$ 以上であるポリアリールケトン樹脂（B）の少なくとも3成分からなる樹脂組成物100重量部に対して充填剤を5～50重量部の範囲で混合したフィルムであって、各成分の混  
25 合重量比が $\{(A-1) + (A-2)\} / (B) = 70 \sim 30 / 30$

～ 70、かつ  $(A-1) / (A-2) = 70 \sim 30 / 30 \sim 70$  であることを特徴とする耐熱性フィルムである。

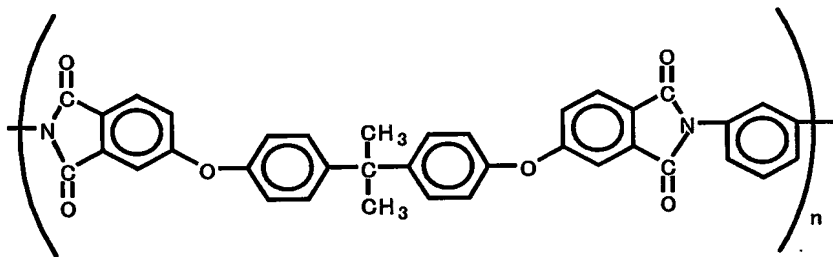
〔式 1〕

5



〔式 2〕

10



15

$\{(A-1) + (A-2)\} / (B)$  は好ましくは  $65 / 35 \sim 35 / 65$ 、より好ましくは  $65 / 35 \sim 45 / 55$  である。また、 $(A-1) / (A-2)$  は好ましくは  $65 / 35 \sim 35 / 65$ 、特に  $65 / 35 \sim 50 / 50$  である。

20

充填剤の配合量は、好ましくは 10～45 重量部、より好ましくは 20～40 重量部である。

本発明は、上記フィルムの少なくとも片面に金属体が積層される金属積層体にも関する。好ましくは、金属体が銅、アルミニウム、又はステンレスである。

25

さらに、本発明は、上記フィルムの片面に銅箔が積層された銅箔積層フィルムの少なくとも 2 枚を積層してなる多層基板にも関する。

加えて、本発明は上記フィルムを構成する樹脂組成物に関する。

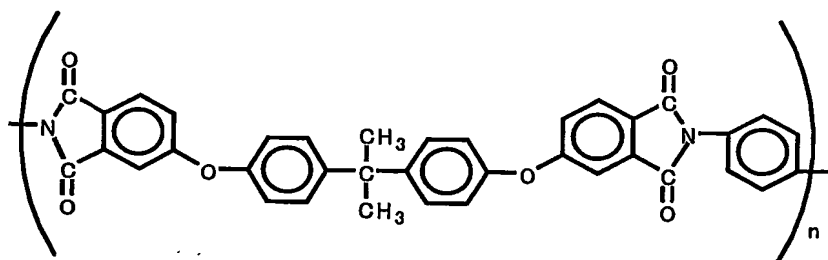
# 発明を実施するための最良の形態

本発明のフィルムは、非晶性ポリエーテルイミド樹脂(A-1)、  
 5 (A-2)と結晶性ポリアリールケトン樹脂(B)とからなる樹脂  
 組成物100重量部に対して充填剤を5～50重量部の範囲で混合  
 したフィルムであって、各成分の混合重量比が{(A-1)+(A-  
 2)} / (B) = 70～30 / 30～70、かつ(A-1) / (A-  
 2) = 70～30 / 30～70であることを特徴とするフィルムで  
 10 ある。本発明でいうフィルムには肉厚が比較的厚い500μ  
 m程度以上のシートも含んでいる。

ここで、本発明を構成する非晶性ポリエーテルイミド樹脂は、  
 その構造単位に芳香族環結合、エーテル結合及びイミド結合  
 を含む非晶性熱可塑性樹脂であり、具体的には、下記構造式  
 15 (1)、(2)に示す繰返し単位を有するポリエーテルイミド  
 が適用され、それぞれ、ゼネラルエレクトリック社製の商品名「U  
 l t e m C R S 5 0 0 1」、「U l t e m 1 0 0 0」等として市販  
 されている。

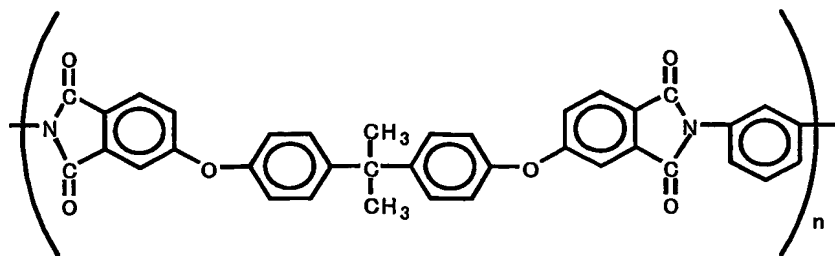
式 1

20



25

式 2

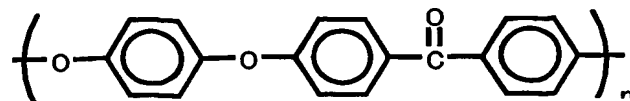


5

非晶性ポリエーテルイミド樹脂の製造方法は特に限定されるものではないが、通常、上記構造式(1)を有する非晶性ポリエーテルイミド樹脂は、4,4'-[イソプロピリデンビス(p-フェニレンオキシ)]ジフタル酸二無水物とp-フェニレンジアミンとの重縮合物として、また上記構造式(2)を有する非晶性ポリエーテルイミド樹脂は、4,4'-[イソプロピリデンビス(p-フェニレンオキシ)]ジフタル酸二無水物とm-フェニレンジアミンとの重縮合物として公知の方法によって合成される。また、上述した非晶性ポリエーテルイミド樹脂には、本発明の主旨を超えない範囲で共重合可能な他の単量体単位を導入してもかまわない。

また、結晶性ポリアリールケトン樹脂は、その構造単位に芳香族環結合、エーテル結合及びケトン結合を含む熱可塑性樹脂であり、その代表例としては、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトンケトン等があるが、本発明においては、下記構造式(3)に示す繰り返し単位を有するポリエーテルエーテルケトンが好適に使用される。この繰り返し単位を有するポリエーテルエーテルケトンは、VICTREX社製の商品名「PEEK 151G」、「PEEK 381G」、「PEEK 450G」などとして市販されている。なお、使用する結晶性ポリアリールケトン樹脂は、1種類を単独で、2種類以上を組み合わせ用いることが出来る。

式 3



5      上記非晶性ポリエーテルイミド樹脂と結晶性ポリアリールケトン樹脂との混合重量比は、70/30～30/70、好ましくは65/35～35/65、より好ましくは65/35～45/55である。該重量比が上記上限値を超えると組成物全体としての結晶性自体が低く、また結晶化速度も遅くなり過ぎ、結晶融解ピーク温度が  
 10    260℃以上であってもはんだ耐熱性が低下するため好ましくない。一方、該重量比が上記下限値未満であると、組成物全体としてのガラス転移温度を向上させる効果が少ないため寸法安定性が不十分となり易く、又、結晶化に伴う体積収縮（寸法変化）が大きくなり回路基板としての信頼性が低下し易いため好ま  
 15    しくない。

また、非晶性ポリエーテルイミド樹脂（A-1）と非晶性ポリエーテルイミド樹脂（A-2）との混合重量比は、70/30～30/70であり、好ましくは65/35～35/65、特には65/35～50/50である。上記上限値を超えると、低温での熱融着に  
 20    より作製した多層基板は、PCT（プレッシャークッカー試験）処理後のはんだ耐熱性試験において、層間の樹脂界面でふくれ等が発生しやすく好ましくない。一方、上記下限値未満では端裂強度を向上させる効果が不十分となり好ましくない。

本発明に用いる充填剤としては、特に制限はなく、公知のものを  
 25    使用することができる。例えば、タルク、マイカ、クレー、ガラス、



アルミナ、シリカ、窒化アルミニウム、窒化珪素などの無機充填剤、ガラス繊維やアラミド繊維などの繊維が挙げられ、これらは１種類を単独で、２種類以上を組み合わせて用いることができる。また、用いる充填剤には、チタネートなどのカップリング剤処理、脂肪酸、  
5 樹脂酸、各種界面活性剤処理などの表面処理を行ってもよい。特に、本発明をプリント配線基板に適用する場合には、平均粒径が１～２０μm程度、平均アスペクト比(粒径／厚み)が２０～３０程度以上、特には５０以上の無機充填剤が好適に用いられる。

充填剤の配合量は、上述した樹脂組成物１００重量部に対して、  
10 ５～５０重量部、好ましくは１０～４５重量部、より好ましくは２０～４０重量部である。上記上限値を超えると、フィルムの可とう性、端裂抵抗値が著しく低下するため好ましくない。一方、上記下限値未満では、線膨張係数を低下して寸法安定性を向上させる効果が少ないため好ましくない。

15 本発明のフィルムをプリント配線基板などのエレクトロニクス用基板の基材として用いる場合には、線膨張係数が $30 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以下であり、かつ端裂抵抗値が縦方向及び横方向ともに少なくとも４０MPa以上、好適には５０MPa以上であることが好ましい。即ち、線膨張係数が $30 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ を超えると、  
20 金属箔を積層した場合にカールやそりが生じやすく、また寸法安定性が不十分となる。好適な線膨張係数の範囲は、使用する金属箔の種類や表裏面に形成する回路パターン、積層構成などによって異なるが、概ね $10 \times 10^{-6} \sim 25 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 程度である。また、端裂抵抗値が４０MPa未満であると、  
25 フレキシブルプリント配線基板などの薄肉基板においては、接続信

頼性が不十分となり易く、また、基板加工工程でのハンドリング適性が不十分となり易く好ましくない。なお、端裂抵抗値の測定法については後述する。

これらの特性は、フィルムを結晶化処理に付することにより達成  
5 される。ここで結晶化処理の方式や時間は、特に限定されるものではないが、例えば、押出キャスト時に結晶化させる方法（キャスト結晶化法）や製膜ライン内で、熱処理ロールや熱風炉等により結晶化させる方法（インライン結晶化法）および製膜ライン外で、恒温槽や熱プレス等により結晶化させる方法（アウトライン結晶化法）な  
10 どを挙げることができる。本発明においては、生産の安定性および物性の均一性から、アウトライン結晶化法が好適に用いられる。また、熱処理時間については、上記した式の関係を満たすればよく、数秒～数十時間、好適には数分から3時間程度の範囲が適用できる。

次に、本発明のフィルムと銅箔などの金属体との積層方法は、特  
15 に制限されるものではないが、上述したフィルムの少なくとも片面に接着層を介することなく金属体を加熱、加圧により熱融着させる方法が好適に用いられる。

金属体とフィルムとを接着層を介することなく熱融着させる方法としては、加熱、加圧できる方法であれば公知の方法を採用すること  
20 とができ、特に限定されるものではない。例えば、所望の熱融着温度に設定されたプレス装置にてフィルムと金属体とを加圧する方法、予め熱融着温度に熱せられた金属体をフィルムに圧着する方法、熱融着温度に設定された熱ロールにてフィルムと金属体とを連続的に加圧する方法、又はこれらを組み合わせた方法などが挙げられる。プ  
25 レス装置を用いる場合、プレス圧力は面圧力で0.98～9.8MP

a (10 ~ 100 Kg / cm<sup>2</sup>) 程度の範囲で、減圧度 973 hPa (ヘクトパスカル) 程度の減圧下で行うと、金属体の酸化を防止でき好ましい。また、各々のフィルムと金属体は、フィルムと金属体の片面同士が接合 (積層) されても良いし、片方または各々の両面が接合 (積層) される形状であってもかまわない。

また、本発明の金属積層体をフレキシブルプリント配線基板、リジッドフレックス基板、ビルドアップ多層基板、一括多層基板、金属ベース基板などのエレクトロニクス用基板の基材として適用する場合において、金属体に導電性回路を形成させる方法についても、エッチングなどの公知の方法を採用することができ、特に限定されるものではない。さらに多層基板とした場合の層間接続の方法としては、例えば、スルーホールに銅メッキする方法やスルーホール、インナーバイアホール中へ導電性ペーストや半田ボールを充填する方法、微細な導電粒子を含有した絶縁層による異方導電性材料を応用する方法などが挙げられる。

本発明に用いられる金属体としては、銅、銀、金、鉄、亜鉛、アルミニウム、マグネシウム、ニッケルなど、またはこれらの合金類が挙げられる。これらは、1種類を単独で、2種類以上を組み合わせで用いることが出来る。さらに、本発明を妨げない範囲の表面処理、例えばアミノシラン剤などによる処理が施された金属であっても良い。

金属体の形状としては、構造部材としての形状の他、電気、電子回路を形成するための細線やエッチング処理にて回路を形成するための箔状 (厚み 3 ~ 70 μm 程度) などが挙げられる。放熱を主目的とするためにはアルミニウム (板、箔) が、耐食性、高強度、高電気抵抗性などが必要な場合はステンレス (板、箔) が好ましく、複雑で

微細な回路形成のためには銅箔であることが好ましい。この場合、表面を黒色酸化処理等の化成処理を施したものが好適に使用される。金属体は、接着効果を高めるために、混合樹脂成形体との接触面（重ねる面）側を予め化学的または機械的に粗化したものを用いることが好ましい。表面粗化処理された銅箔の具体例としては、電解銅箔を製造する際に電気化学的に処理された粗化銅箔などが挙げられる。

本発明フィルムを構成する樹脂組成物には、その性質を損なわない程度に、他の樹脂や充填剤以外の各種添加剤、例えば、熱安定剤、紫外線吸収剤、光安定剤、核剤、着色剤、滑剤、難燃剤等を適宜配合しても良い。また充填剤を含めた各種添加剤の混合方法は、公知の方法を用いることができる。例えば、(a) 各種添加剤を結晶性ポリアリールケトン樹脂及び／又は非晶性ポリエーテルイミド樹脂などの適当なベース樹脂に高濃度（代表的な含有量としては10～60重量％程度）に混合したマスターバッチを別途作製しておき、これを使用する樹脂に濃度を調整して混合し、ニーダーや押出機等を用いて機械的にブレンドする方法、(b) 使用する樹脂に直接各種添加剤をニーダーや押出機等を用いて機械的にブレンドする方法などが挙げられる。上記混合方法の中では、(a) のマスターバッチを作製し、混合する方法が分散性や作業性の点から好ましい。さらに、フィルムの表面にはハンドリング性の改良等のために、エンボス加工やコロナ処理等を適宜施してもかまわない。

本発明フィルムの製膜方法としては、公知の方法、例えばＴダイを用いる押出キャスト法やカレンダー法等を採用することができ、特に限定されるものではないが、フィルムの製膜性や安定生産性等の面から、Ｔダイを用いる押出キャスト法が好ましい。Ｔダイを用

いる押出キャスト法での成形温度は、組成物の流動特性や製膜性等によって適宜調整されるが、概ね融点以上、 $430^{\circ}\text{C}$ 以下である。

また、該フィルムの厚みは、特に制限されるものではないが、通常 $10\sim 800\mu\text{m}$ 程度である。

5

## 実施例

以下に実施例で本発明をさらに詳しく説明するが、これらにより本発明は何ら制限を受けるものではない。なお、本明細書中表示されるフィルムについての種々の測定値および評価は次のようにして行った。ここで、フィルムの押出機からの流れ方向を縦方向、その直交方向を横方向とよぶ。

(1) ガラス転移温度 ( $T_g$ )、結晶融解ピーク温度 ( $T_m$ )

パーキンエルマー (株) 製 DSC-7 を用いて、試料  $10\text{mg}$  を JIS K 7121 に準じて、加熱速度を  $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$  で昇温した時のサーモグラムから求めた。

(2) 端裂抵抗値

JIS C 2151 の端裂抵抗試験に準拠して、多層基板作製時のプレス条件と同様に温度  $250^{\circ}\text{C}$ 、時間 30 分の条件で結晶化処理した厚さ  $75\mu\text{m}$  のフィルムから幅  $15\text{mm}$ 、長さ  $300\text{mm}$  の試験片を切り出し、試験金具 B を用いて、引張速度  $500\text{mm}/\text{分}$  の条件で縦方向及び横方向を測定した。

(3) 接着強度

JIS C 6481 の常態の引き剥がし強さに準拠して、両面の銅箔について夫々測定し、その平均値を  $\text{N}/\text{mm}$  で表示した。

25 (4) はんだ耐熱性

J I S C 6 4 8 1 の常態のはんだ耐熱性に準拠し、260℃のはんだ浴に多層基板を銅箔側とはんだ浴とが接触するように20秒間浮かべ、室温まで冷却した後、膨れやはがれ等の有無を目視によって調べ、良否を判定した。

5 (5) P C T 処理後のはんだ耐熱性

プレッシャークッカー試験機を用い、作製した多層基板を温度：121℃、湿度：100%RH、気圧：202650Pa(2atm)の条件で4時間処理した後に取り出し、J I S C 6 4 8 1 の常態のはんだ耐熱性に準拠し、260℃のはんだ浴に多層基板を銅箔側とはんだ浴とが接触するように20秒間浮かべ、室温まで冷却した後、膨れ及びはがれ等の有無を目視によって調べ、良否を判定した。

実施例 1

表1に示すように、本発明における樹脂(A-1)としてポリエーテルイミド樹脂[ゼネラルエレクトリック社製、U l t e m - C R S 5 0 0 1、T<sub>g</sub>:226℃](以下、P E I - 1 と略記することがある)30重量部、樹脂(A-2)としてポリエーテルイミド樹脂[ゼネラルエレクトリック社製、U l t e m - 1 0 0 0、T<sub>g</sub>:216℃](以下、P E I - 2 と略記することがある)20重量部、樹脂(B)としてポリエーテルエーテルケトン樹脂[ビクトレックス社製、P E E K 3 8 1 G、T<sub>g</sub>:143℃、T<sub>m</sub>:334℃](以下、P E E K と略記することがある)50重量部および市販のマイカ(平均粒径:10μm、アスペクト比:50)25重量部とからなる混合組成物を、Tダイを備えた押出機を用いて設定温度380℃で、厚さ75μmのフィルムに押出し、同時に銅箔(厚さ:18μm、表面粗面化)をラミネートすることにより片面銅箔積層フィルムを得た。ま

た、評価用に厚さ  $75\text{ }\mu\text{m}$  のフィルム単体も得た。次いで得られた片面銅箔積層フィルムを A4 サイズに切り出し、エッチングにより所望の回路を形成後、スールホールを加工して導電性ペーストを充填した。さらに導電性ペーストを充填した片面銅箔積層フィルムを 3

5 枚（銅箔／樹脂フィルム／銅箔／樹脂フィルム／銅箔／樹脂フィルム／銅箔）積層し、温度  $250^{\circ}\text{C}$ 、時間 30 分、圧力  $2.94\text{ MPa}$  の条件で真空プレスし、多層基板を作製した。得られた多層基板を用いて評価した結果を表 1 に示す。

#### 比較例 1

- 10 表 1 に示すように、実施例 1 において使用した樹脂組成物を P E I - 1 / P E E K = 50 / 50 重量部に変更した以外は、実施例 1 と同様に多層基板を得た。得られた多層基板を用いて評価した結果を表 1 に示す。

#### 比較例 2

- 15 表 1 に示すように、実施例 1 において使用した樹脂組成物を P E I - 1 / P E I - 2 / P E E K = 10 / 40 / 50 重量部に変更した以外は、実施例 1 と同様に多層基板を得た。得られた多層基板を用いて評価した結果を表 1 に示す。

#### 比較例 3

- 20 表 1 に示すように、実施例 1 において使用した樹脂組成物を P E I - 2 / P E E K = 50 / 50 重量部に変更した以外は、実施例 1 と同様に多層基板を得た。得られた多層基板を用いて評価した結果を表 1 に示す。

表 1

		実施例	比較例		
		1	1	2	3
PEI-1 (重量部)		30	50	10	
PEI-2 (重量部)		20		40	50
PEEK (重量部)		50	50	50	50
マイカ (重量部)		25	25	25	25
端裂抵抗値 (MPa)	縦	158.8	176.3	136.2	129.7
	横	82.9	88.1	38.2	35.5
プレス温度 (°C)		250	250	250	250
接着強度 (N/mm)		1.5	1.4	1.6	1.6
はんだ耐熱性		良好	良好	良好	良好
PCT処理後のはんだ耐熱性		良好	不良 ふくれ発生	良好	良好

表 1 より、本発明で規定するポリアリールケトン樹脂と 2 種類の  
 ポリエーテルイミド樹脂を有し、かつそれらの混合重量比が規定の  
 5 範囲内にある実施例 1 のフィルムは、低温熱融着における PCT 処  
 理後のはんだ耐熱性と端裂抵抗値ともに優れていることが分かる。  
 これに対して、本発明で規定するポリエーテルイミド樹脂がどちら  
 か一方しか含有されない場合は、低温熱融着における PCT 処理後  
 のはんだ耐熱性が不良となり(比較例 1)、又は端裂抵抗値が劣る(比  
 10 較例 3) ことが分かる。また、本発明で規定するポリアリールケトン  
 樹脂と 2 種類のポリエーテルイミド樹脂を含有しても、それらの混  
 合重量比が規定の範囲内になれば、両者の特性をバランスよく満  
 足できないことが分かる(比較例 2)。

## 15 産業上の利用可能性

本発明によれば、低温 ( $\leq 260^{\circ}\text{C}$ ) での熱融着性が良好であり、  
 かつ PCT (プレッシャークッカー試験) 処理後のはんだ耐熱性と

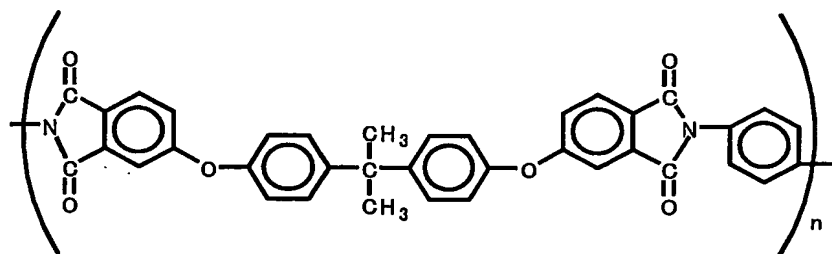


端裂抵抗値のバランスに優れたエレクトロニクス用部材として好適な耐熱性フィルムおよびその金属積層体が提供される。

## 請求の範囲

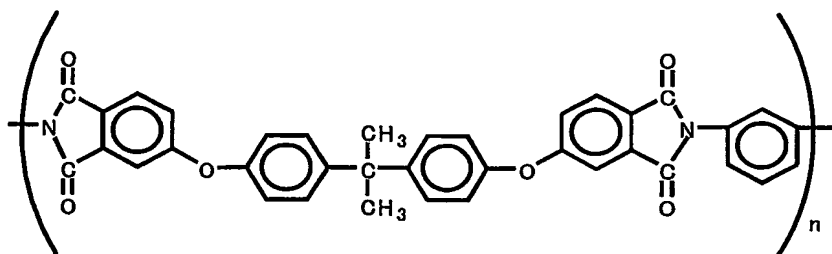
1. 下記構造式(1)の繰返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂(A-1)、下記構造式(2)の繰返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂(A-2)、結晶融解ピーク温度が260℃以上であるポリアリールケトン樹脂(B)、及び(A-1)、(A-2)及び(B)の合計100重量部に対して5～50重量部の充填剤を含むフィルムであって、各樹脂成分の重量比が $[(A-1) + (A-2)] / (B) = 70 / 30 \sim 30 / 70$ 、且つ $(A-1) / (A-2) = 70 / 30 \sim 30 / 70$ であることを特徴とするフィルム。

10 式 1



15

式 2



20

2. 充填剤の量が、(A-1)、(A-2)及び(B)の合計100重量部に対して10～45重量部であり、 $[(A-1) + (A-2)] / (B) = 65 / 35 \sim 35 / 65$ 、且つ $(A-1) / (A-2) = 65 / 35 \sim 35 / 65$ であることを特徴とする請求項1記載のフ

イルム。

3. 充填剤の量が、 $(A-1)$ 、 $(A-2)$  及び  $(B)$  の合計 100 重量部に対して 20 ~ 40 重量部であり、 $\{(A-1) + (A-2)\} / (B) = 65 / 35 \sim 45 / 55$ 、且つ  $(A-1) / (A-2) = 65 / 35 \sim 50 / 50$  であることを特徴とする請求項 1 記載のフィルム。

4. 請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載のフィルムの少なくとも片面に金属体が積層されてなる金属積層体。

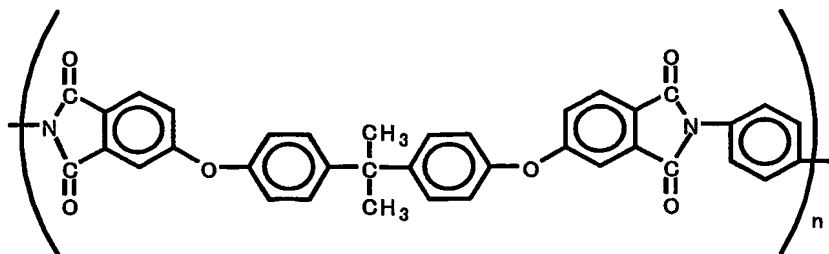
5. 金属体が銅、アルミニウム、又はステンレスであることを特徴とする請求項 4 記載の金属積層体。

6. 請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載のフィルムの片面に銅箔が積層された銅箔積層フィルムの少なくとも 2 枚を積層してなる多層基板。

7. 下記構造式 (1) の繰返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂 (A-1)、下記構造式 (2) の繰返し単位を有するポリエーテルイミド樹脂 (A-2)、結晶融解ピーク温度が 260 °C 以上であるポリアリールケトン樹脂 (B)、及び  $(A-1)$ 、 $(A-2)$  及び  $(B)$  の合計 100 重量部に対して 5 ~ 50 重量部の充填剤を含み、各樹脂成分の重量比が  $\{(A-1) + (A-2)\} / (B) = 70 / 30 \sim 30 / 70$ 、且つ  $(A-1) / (A-2) = 70 / 30 \sim 30 / 70$  であることを特徴とする樹脂組成物。

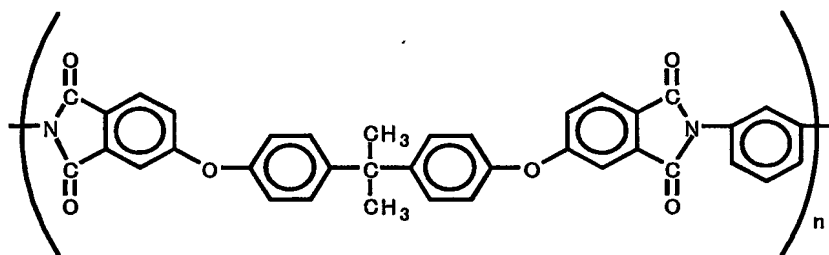
式 1

5



式 2

10



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/08080

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L79/08, C08J5/18, B32B15/08 // C08L79:08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L79/00-79/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X	JP 2002-226699 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 14 August, 2002 (14.08.02), Claims (Family: none)	1-7
A	WO 02/57343 A1 (Mitsubishi Plastics, Inc.), 25 July, 2002 (25.07.02), Full text & JP 2002-212314 A	1-7
A	JP 2002-144436 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 21 May, 2002 (21.05.02), Full text (Family: none)	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
30 September, 2002 (30.09.02)

Date of mailing of the international search report  
15 October, 2002 (15.10.02)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/08080

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-105221 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 10 April, 2002 (10.04.02), Full text (Family: none)	1-7
A	JP 2002-52648 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 19 February, 2002 (19.02.02), Full text (Family: none)	1-7
A	JP 2000-277875 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 06 October, 2000 (06.10.00), Full text (Family: none)	1-7

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L79/08, C08J5/18, B32B15/08//C08L79:08

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L79/00-79/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
EX	JP 2002-226699 A (三菱樹脂株式会社) 2002.08.14, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-7
A	WO 02/57343 A1 (三菱樹脂株式会社) 2002.07.25, 全文 & JP 2002-212314 A	1-7
A	JP 2002-144436 A (三菱樹脂株式会社) 2002.05.21, 全文 (ファミリーなし)	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

30.09.02

国際調査報告の発送日

15.10.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小野寺 務



4J

2941

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2 0 0 2 - 1 0 5 2 2 1 A (三菱樹脂株式会社) 2 0 0 2 . 0 4 . 1 0 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 7
A	J P 2 0 0 2 - 5 2 6 4 8 A (三菱樹脂株式会社) 2 0 0 2 . 0 2 . 1 9 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 7
A	J P 2 0 0 0 - 2 7 7 8 7 5 A (三菱樹脂株式会社) 2 0 0 0 . 1 0 . 0 6 , 全文 (ファミリーなし)	1 - 7